

日本国特許庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日  
Date of Application:

2000年 6月29日

出願番号  
Application Number:

特願2000-196526

出願人  
Applicant(s):

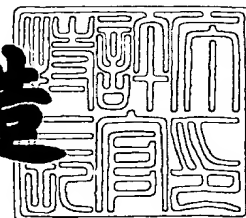
新東ブレーター株式会社  
新日本製鐵株式会社

JC912 U.S. PTO  
09/748490  
12/26/00

2000年12月 1日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2000-3098366

【書類名】 特許願

【整理番号】 PG120629-4

【提出日】 平成12年 6月29日

【あて先】 特許庁長官 近藤 隆彦 殿

【国際特許分類】 H01M 08/22  
H01M 02/14  
C22C 38/18

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県西春日井郡西春町大字字福寺字神明 5 1 番地 新  
東ブレーター株式会社内

【氏名】 久田 渡

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県富津市新富 2 0 - 1 新日本製鐵株式会社技術開  
発本部門内

【氏名】 紀平 寛

【特許出願人】

【識別番号】 390031185

【氏名又は名称】 新東ブレーター株式会社

【特許出願人】

【識別番号】 000006655

【氏名又は名称】 新日本製鐵株式会社

【代理人】

【識別番号】 100078101

【弁理士】

【氏名又は名称】 綿貫 達雄

【選任した代理人】

【識別番号】 100059096

【弁理士】

【氏名又は名称】 名嶋 明郎

【選任した代理人】

【識別番号】 100085523

【弁理士】

【氏名又は名称】 山本 文夫

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 平成11年特許願第369817号

【出願日】 平成11年12月27日

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 038955

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9806801

【包括委任状番号】 9707371

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 高耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性金属の燃料電池用セパレーターへの付着方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 燃料電池を形成する単位セルのセパレーターに、このセパレーターより高硬度の核粒子に高耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性の金属をコーティングした固体プレーティング材を投射して、この固体プレーティング材にコーティングされた金属をセパレーターに強制的に付着させることを特徴とする高耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性金属の燃料電池用セパレーターへの付着方法。

【請求項 2】 セパレーターへの固体プレーティング材の投射速度が、20～100 m/秒であることを特徴とする請求項 1 に記載の高耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性金属の燃料電池用セパレーターへの付着方法。

【請求項 3】 セパレーターへの固体プレーティング材の投射を、乾燥空気流によって行なうことを特徴とする請求項 1 また 2 に記載の高耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性金属の燃料電池用セパレーターへの付着方法。

【請求項 4】 セパレーターへの固体プレーティング材の投射を、回転する羽根車によって行なうことを特徴とする請求項 1 また 2 に記載の燃料電池用セパレーターの製造方法。

【請求項 5】 セパレーターへの固体プレーティング材の投射を、水流によって行なうことを特徴とする請求項 1 また 2 に記載の燃料電池用セパレーターの製造方法。

【請求項 6】 セパレーターへの固体プレーティング材の投射を、不活性ガス流によって行なうことを特徴とする請求項 1 また 2 に記載の燃料電池用セパレーターの製造方法。

【請求項 7】 固体プレーティング材の核粒子が、粒子径 30～300  $\mu\text{m}$ 、真比重 2～15、硬度 400/2000 Hvであることを特徴とする請求項 1～6 のいずれかに記載の高耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性金属の燃料電池用セパレーターへの付着方法。

【請求項 8】 固体プレーティング材の核粒子が、超硬合金であることを特徴

とする請求項 1～7 のいずれかに記載の高耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性金属の燃料電池用セパレーターへの付着方法。

【請求項 9】 固体プレーティング材の核粒子にコーティングする高耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性の金属が、単一またはその合金であることを特徴とする請求項 1～8 のいずれかに記載の高耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性金属の燃料電池用セパレーターへの付着方法。

【請求項 10】 固体プレーティング材の核粒子にコーティングする高耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性の金属が、金、銀、銅、Ni のうちの少なくとも 1 つであることを特徴とする請求項 1～9 のいずれかに記載の高耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性金属の燃料電池用セパレーターへの付着方法。

【請求項 11】 対カーボン接触抵抗値を、接触面圧  $1 \text{ kg} \cdot \text{f}/\text{cm}^2$  以上において  $20 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$  以下とすることを特徴とする請求項 1～10 のいずれかに記載の高耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性金属の燃料電池用セパレーターへの付着方法。

#### 【発明の詳細な説明】

##### 【0001】

#### 【発明の属する技術分野】

本発明は、燃料電池を形成する単位セルのセパレーターに、高耐食性で対カーボン低接触抵抗性の金属を付着させる方法に関する。

##### 【0002】

#### 【従来の技術】

燃料電池としては、固体高分子型燃料電池、磷酸型燃料電池、熔融炭酸塩型燃料電池、アルカリ型燃料電池等がある。これらの燃料電池は電解質が異なっているが、水素と酸素の電気化学反応によって起電力を得ている。燃料電池は積層された単位電池（セル）によって形成され、隣接した各セル間には各セルを電氣的に接続させ、また、各セルへ供給される反応ガスの分離作用を行なうセパレーターが設置されている。

##### 【0003】

このセパレーターとしては、カーボン材が主として使用されているが、カーボ

ンは、要求されるセパレーター形状にするために、母材からの削り出しや圧粉成形などを行っており、従って、生産性が低くまた製造コストが高かった。また、金属製のセパレーターとしてチタン製のものも一部使用されているが、チタンは素材そのものが高価であり、低コスト化に限界がある。

そこで、生産性が高くて安価であり、しかも、板厚を薄くすることで軽量化が可能な材料であるステンレスやアルミニウムなどの金属を母材としたセパレーターが特開平 1 0 - 2 2 8 9 1 4 号公報などにより提案されているが、このような金属を母材とする場合には、電極カーボン又は集電体となるカーボンペーパーとの接触抵抗を低下させ且つ耐食性をもたせるために、貴金属のメッキを施す必要がある。このメッキは通常のメッキとは異なり不動態膜を除去後即時にメッキしなければならないため、湿式の場合、脱脂工程、洗浄工程、表面活性化工程、洗浄工程、メッキ工程、洗浄工程、乾燥工程の多くの工程を経なければならず、また、PVD法やCVD法は装置自体が大型になるという問題があった。

#### 【 0 0 0 4 】

##### 【発明が解決しようとする課題】

本発明が解決しようとするところは前記したような問題を解決して、生産性が高くて安価であり、しかも、板厚を薄くすることで軽量化が可能な材料であるステンレスやアルミニウムなどの金属を母材として使用しながら、その表面に高耐食性で対カーボン低接触抵抗性の金属を簡単な設備で簡便に付着することにより、安価な燃料電池用のセパレーターを提供できるようにした高耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性金属の燃料電池用セパレーターへの付着方法を提供することにある。

#### 【 0 0 0 5 】

##### 【課題を解決するための手段】

前記のような課題を解決した本発明は、燃料電池を形成する単位セルのセパレーターに、このセパレーターより高硬度の核粒子に高耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性の金属をコーティングした固体プレーティング材を投射して、この固体プレーティング材にコーティングされた金属をセパレーターに強制的に付着させることを特徴とする高耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性金属の燃料電池用セパ

レーターへの付着方法を基本とするものである。

【0006】

そして、前記した発明において、セパレーターへの固体プレーティング材の投射速度を20～100m/秒とした発明を請求項2に係る発明とする。また、前記した各発明におけるセパレーターへの固体プレーティング材の投射を、乾燥空気流によって行なう方法を請求項3に係る発明とし、同じく回転する羽根車によって行なう方法を請求項4に係る発明とし、同じく水流によって行なう方法を請求項5に係る発明とし、同じく不活性ガス流によって行なう方法を請求項6に係る発明とする。

【0007】

また、前記した各発明において用いる固体プレーティング材の核粒子を、粒子径30～300 $\mu$ m、真比重2～15、硬度400/2000Hvとした方法を請求項7に係る発明とし、同じく核粒子として超硬合金を用いる前記した請求項1～7に記載の方法を請求項8に係る発明とする。

【0008】

さらに、前記した各発明において、固体プレーティング材の核粒子にコーティングする高耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性の金属を、単一またはその合金とした方法を請求項9に係る発明とし、同じく前記金属を、金、銀、銅、Niのうちの少なくとも1つとした方法を請求項10に係る発明とする。さらにまた、前記した各発明における対カーボン接触抵抗値を、接触面圧1kg $\cdot$ f/cm<sup>2</sup>以上において20m $\Omega$  $\cdot$ cm<sup>2</sup>以下とする方法を請求項11に係る発明とする。

【0009】

このような本発明方法によれば、固体プレーティング材がセパレーター材料より高硬度であるため、固体プレーティング材がセパレーター材料に衝突すると、先ずセパレーター材料の表面の不動態膜が破壊されて母材の真表面が出現すると同時に適切な表面荒れ（アンカーパターン効果）が起こり、このアンカー部によって固体プレーティング材のコーティング材には機械的に塑性変形が起こって（引っかき効果）コーティング材がセパレーターの母材真表面に強制的に付着され、さらに、粒子核による投射圧で付着コーティング材は圧延されてセパレーター

材料の表面には均一なコーティング層が形成される。

なお、前記したような固体プレーティング材を用いずに、粒子全体が金や銀のような軟質材よりなる固体プレーティング材を投射すると、セパレーター材料へ衝突してもセパレーター材料表面の不動態膜を十分に破壊できないうえにアンカパターン効果も得られず、また、金、銀などの貴金属は高価なため、本発明の目的である不動態膜の破壊と低接触抵抗層の形成を同時に簡便にすることができない。

#### 【 0 0 1 0 】

また、本発明において、固体プレーティング材の衝突速度は、核粒子の材質により 2 0 ～ 1 0 0 m / 秒の範囲で選択することが好ましい。その理由は、セパレーターの材質によって不動態膜の厚み、強度、母材の厚み、核粒子の硬度、真比重によって最適な組み合わせがあるためであり、例えば、核粒子が超硬合金の場合、高硬度で高比重であるため低速度でも十分用をなしうるが、ランニングコストおよびセパレーターの変形などを考慮すると 2 0 ～ 4 0 m / 秒程度が好ましく、これに対して核粒子がガラスビーズのように中硬度、低比重の場合には、1 0 0 m / 秒までの範囲でこれより高速度としないと効率的な処理を行なうことができないからである。

#### 【 0 0 1 1 】

さらに、本発明において、固体プレーティング材の加速媒体は、固体プレーティング材の流量、衝突速度を制御できれば乾燥空気流、羽根車、水流、不活性ガス流のいずれでもよいが、固体プレーティング材の流量、衝突速度の制御上と、経済性、作業性を考えると、最も適しているのは乾燥空気流である。

#### 【 0 0 1 2 】

なお、本発明のように、固体プレーティング材を加速してセパレーター表面に衝突させると、クリーニング効果もあるので、多少汚染されたセパレーター表面であっても前処理工程を省略して実施可能である。

#### 【 0 0 1 3 】

##### 【発明の実施の形態】

以下に、本発明の好ましい実施の形態を実施例として挙げ、これを比較試料と



対比しながら説明する。

〔既知試料〕

まず、試料として同一面積の 2 枚の金板間にこれら金板と同一面積であるカーボンペーパーを挟持させ、両金板間に種々の荷重を負荷して面圧を変化させ、両金板間に一定電流を通電してその時の電圧を測定した。そして、各試料の面積から電流密度を算出し、前記試料の測定結果から各面圧での面抵抗率を算出して、金とカーボンペーパーとの接触抵抗値を得た。

次に、試料として前記した金板と同一の面積で、表面を鏡面研磨したステンレス板（J I S S U S 3 1 6）と、前記した金板と同じ金板との間にこれら試料と同一面積であるカーボンペーパーを挟持させ、このステンレス板と金板間に一定電流を通電してその時の電圧を測定し、その結果から前記同様にしてステンレス板とカーボンペーパーとの接触抵抗値を算出した。

【 0 0 1 4 】

〔実施例 1〕

1 0 0  $\mu$  m の超硬合金粒子を核粒子とし、コーティング材としての金を用い、この金を前記核粒子の表面に直接メッキして本発明に用いる固体プレーティング材を得た。一方、セパレーターとなる母材として、直径 3 0 m m、厚さ 4 m m のステンレス板（J I S S U S 3 1 6）よりなる円板を鏡面研磨した接触抵抗測定用の試験片を用い、その表面に向けて前記固体プレーティング材を、0. 4 M P a の空気圧力にて加速し毎分 3 5 m の速度で、入射角度 6 0 度の条件で投射し、前記した試験片の表面に衝突させたところ、接触抵抗測定用の試験片の表面に均一な金のコーティング皮膜が形成された試片を得た。

この試片とカーボンペーパーとの接触抵抗値を接触面圧  $1 \text{ kg} \cdot \text{f}/\text{cm}^2$  にて測定して前記した既知試料を作成した場合と同様の方法で算出したところ、 $20 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$  以下となり、接触面圧  $1 \text{ kg} \cdot \text{f}/\text{cm}^2$  での既知試料である未処理のステンレス板とカーボンペーパーとの接触抵抗値の約  $1/100$  となった。

【 0 0 1 5 】

〔実施例 2〕

実施例 1 と同じ固体プレーティング材およびセパレーターとなる母材としての

触抵抗測定用の試験片を用い、この試験片の表面に向けて前記固体プレーティング材を、0.4 MPaの空気圧力にて加速し毎分35mの速度で、入射角度45度にて衝突させたところ、接触抵抗測定用の試験片の表面に均一な金のコーティング皮膜が形成された試験片を得た。

この試片とカーボンペーパーとの接触抵抗値を接触面圧 $1\text{ kg} \cdot \text{f}/\text{cm}^2$ にて測定し、前記した既知試料を作成した場合と同様の方法で算出したところ $20\text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ 以下となり、接触面圧 $1\text{ kg} \cdot \text{f}/\text{cm}^2$ において既知試料とした未処理のステンレス板とカーボンとの接触抵抗値の約 $1/100$ になった。

#### 【0016】

既知試料として前記した金とカーボンの各面圧での接触抵抗値および未処理のステンレスとカーボンの各面圧での接触抵抗値と、本発明方法により処理された前記実施例1および実施例2における各面圧での接触抵抗値とをいずれも図1、図2に示す。

実験によれば、本発明方法により処理したものの接触抵抗値は、本試験の最大面圧 $10\text{ kg} \cdot \text{f}/\text{cm}^2$ において $3 \sim 5\text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ であった。これは、同接触面圧の既知試料として挙げた未処理ステンレスとカーボンとの接触抵抗値が $300 \sim 500\text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ であるのに対して約 $1/100$ であって、同じく同接触面圧の既知試料として挙げた金とカーボンとの接触抵抗値 $3 \sim 4\text{ m}\Omega \cdot \text{cm}^2$ と略同等であった。

#### 【0017】

##### 【発明の効果】

本発明は以上の説明から明らかなように、燃料電池を形成する単位セルのセパレーターとして、生産性が高いうえに安価なステンレスやアルミニウムのような金属よりなる母材に金などの高耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性の金属被膜を形成する場合に、工程が複雑なうえに装置が大掛かりで、しかも、廃液、廃水処理に手間のかかる湿式メッキを行なうことなく、生産性が高く、簡便な方法で行なうことができる利点を有している。

よって、本発明はステンレスやアルミニウムなどの金属の表面に高耐食性で対カーボン低接触抵抗性の金属を簡単な設備で簡便に付着し、これにより安価な燃

料電池用のセパレーターを提供できるようにした耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性金属の燃料電池用セパレーターへの付着方法として業界の発展に寄与するところ極めて大きいものがある。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の実施例 1 と比較試料との実験結果における面圧と接触抵抗値との関係を示すグラフである。

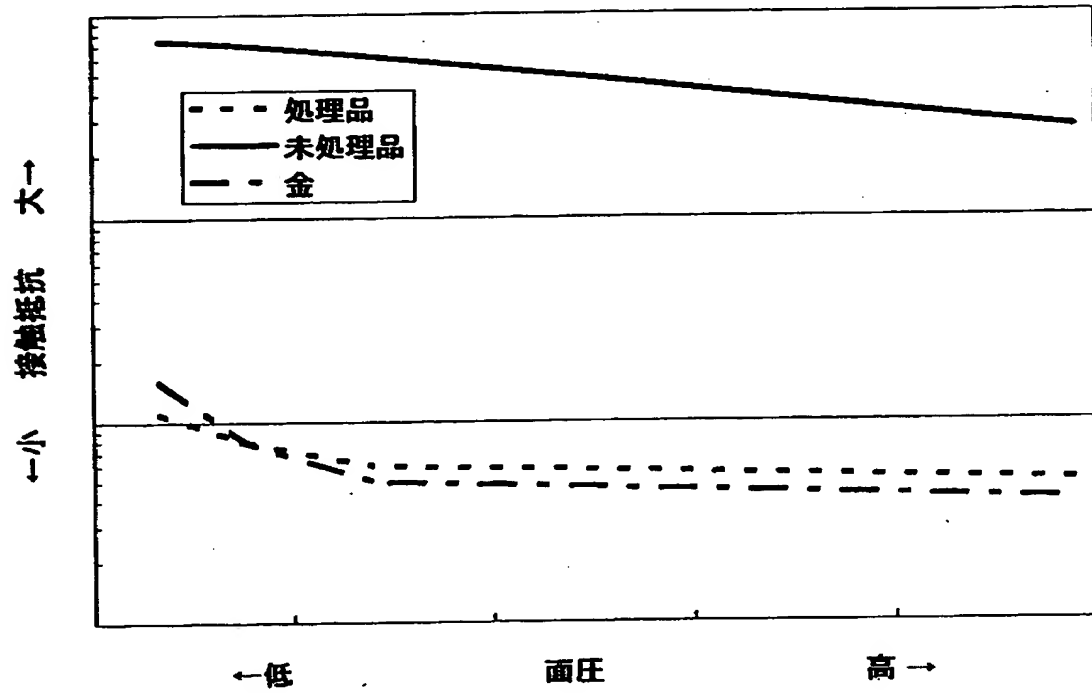
【図 2】

本発明の実施例 2 と比較試料との実験結果における面圧と接触抵抗値との関係を示すグラフである。

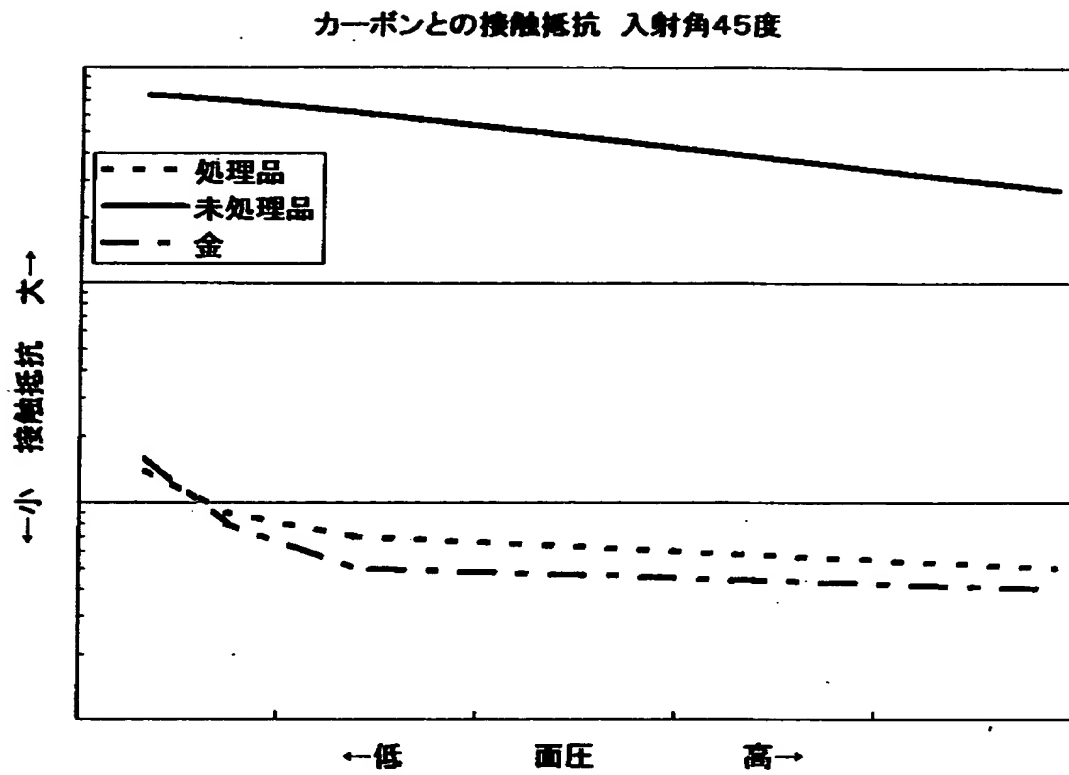
【書類名】 図面

【図 1】

カーボンとの接触抵抗 入射角 60度



【図 2】



【書類名】        要約書

【要約】

【課題】    生産性が高くて安価であり、しかも、軽量化が可能な金属を母材として使用しながら、その表面に高耐食性で対カーボン低接触抵抗性の金属を簡単な設備で簡便に付着することができる高耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性金属の燃料電池用セパレーターへの付着方法を提供すること。

【解決手段】    燃料電池を形成する単位セルのセパレーターに、このセパレーターより高硬度の核粒子に高耐食性かつ対カーボン低接触抵抗性の金属をコーティングした固体プレーティング材を投射して、この固体プレーティング材にコーティングされた金属をセパレーターに強制的に付着させる。

【選択図】        なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2000-196526
受付番号	50000817693
書類名	特許願
担当官	小菅 博 2143
作成日	平成12年 7月 5日

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】

【識別番号】	390031185
【住所又は居所】	愛知県名古屋市中村区名駅4丁目7番23号
【氏名又は名称】	新東ブレーター株式会社

【特許出願人】

【識別番号】	000006655
【住所又は居所】	東京都千代田区大手町2丁目6番3号
【氏名又は名称】	新日本製鐵株式会社

【代理人】

申請人	
【識別番号】	100078101
【住所又は居所】	愛知県名古屋市中村区名駅四丁目2番12号 富士ビル内 名嶋・山本・綿貫特許事務所
【氏名又は名称】	綿貫 達雄

【選任した代理人】

【識別番号】	100059096
【住所又は居所】	愛知県名古屋市中村区名駅4丁目2番12号 富士ビル内 名嶋・山本・綿貫特許事務所
【氏名又は名称】	名嶋 明郎

【選任した代理人】

【識別番号】	100085523
【住所又は居所】	愛知県名古屋市中村区名駅4丁目2番12号 富士ビル内 名嶋・山本・綿貫特許事務所
【氏名又は名称】	山本 文夫

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [390031185]

1. 変更年月日	1990年11月29日
[変更理由]	新規登録
住 所	愛知県名古屋市中村区名駅4丁目7番23号
氏 名	新東ブレーター株式会社



出 願 人 履 歷 情 報

識別番号 [000006655]

1. 変更年月日	1990年 8月10日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都千代田区大手町2丁目6番3号
氏 名	新日本製鐵株式会社